

& ✓ **BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

09 / 748 876

EJKU



REC'D 21 SEP 1999

WIPO PCT

EP 99/4929

## Bescheinigung

Die Bayer Aktiengesellschaft in Leverkusen/Deutschland hat eine Patentanmeldung unter der Bezeichnung

"Substituierte Benzoylcyclohexandione"

am 24. Juli 1998 beim Deutschen Patent- und Markenamt eingereicht.

Das angeheftete Stück ist eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlage dieser Patentanmeldung.

Die Anmeldung hat im Deutschen Patent- und Markenamt vorläufig die Symbole C 07 D, A 01 N und C 07 C der Internationalen Patentklassifikation erhalten.

München, den 29. April 1999

Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident

Im Auftrag

Faust

Zeichen: 198 33 360.9

Substituierte Benzoylcyclohexandione

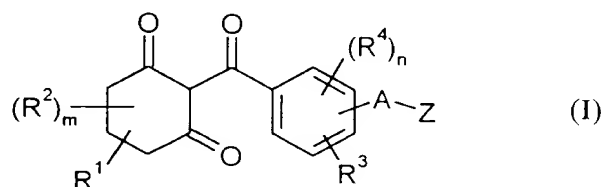
Die Erfindung betrifft neue substituierte Benzoylcyclohexandione, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

5

Es ist bereits bekannt, daß bestimmte substituierte Benzoylcyclohexandione herbizide Eigenschaften aufweisen (vgl. EP-A-090262, EP-A-135191, EP-A-186118, EP-A-186119, EP-A-186120, EP-A-319075, WO-A-96/26200, WO-A-97/46530). Die Wirkung dieser Verbindungen ist jedoch nicht in allen Belangen zufriedenstellend.

10

Es wurden nun die neuen substituierten Benzoylcyclohexandione der allgemeinen Formel (I),



15

in welcher

m für die Zahlen 0, 1, 2 oder 3 steht,

n für die Zahlen 0, 1, 2 oder 3 steht,

20

A für eine Einfachbindung oder für Alkandiyl (Alkylen) steht,

R<sup>1</sup> für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl oder Alkoxycarbonyl steht,

25

R<sup>2</sup> für gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht, oder zusammen mit R<sup>1</sup> für Alkandiyl (Alkylen) steht, wobei in diesem Fall m für 1 steht und R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> am gleichen Kohlenstoffatom („geminal“) oder an zwei benachbarten Kohlenstoffatomen („vicinal“) stehen,

5 R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino oder Dialkylaminosulfonyl steht,

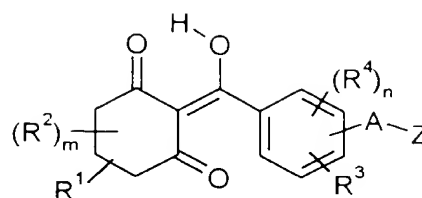
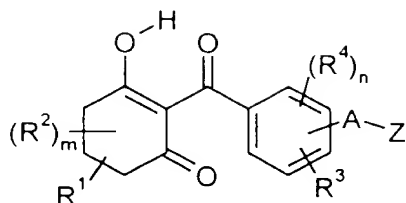
10 R<sup>4</sup> Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino oder Dialkylaminosulfonyl steht, und

15 Z für eine gegebenenfalls substituierte 4- bis 12-gliedrige, gesättigte oder ungesättigte, monocyclische oder bicyclische, heterocyclische Gruppierung steht, welche 1 bis 4 Heteroatome (bis zu 4 Stickstoffatome und gegebenenfalls - alternativ oder additiv - ein Sauerstoffatom oder ein Schwefelatom, oder eine SO-Gruppierung oder eine SO<sub>2</sub>-Gruppierung) enthält, und welche zusätzlich ein bis drei Oxo-Gruppen (C=O) und/oder Thioxo-Gruppen (C=S) als Bestandteile des Heterocyclus enthält,

20 - einschließlich aller möglichen tautomeren Formen der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) und der möglichen Salze der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) - gefunden.

In den Definitionen sind die Kohlenwasserstoffketten, wie Alkyl oder Alkandiyl - auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie in Alkoxy - jeweils geradkettig oder verzweigt.

25 Neben den Verbindungen der allgemeinen Formel (I) - oben - können immer auch die entsprechenden tautomeren Formen - nachstehend beispielhaft dargestellt - vorliegen.



Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise substituierte Benzoylcyclohexandione der Formel (I), in welcher

5 m für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

10 A für eine Einfachbindung oder für Alkandiyl (Alkylen) mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

15 R<sup>1</sup> für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für Alkoxycarbonyl mit bis zu 6 Kohlenstoffatomen steht,

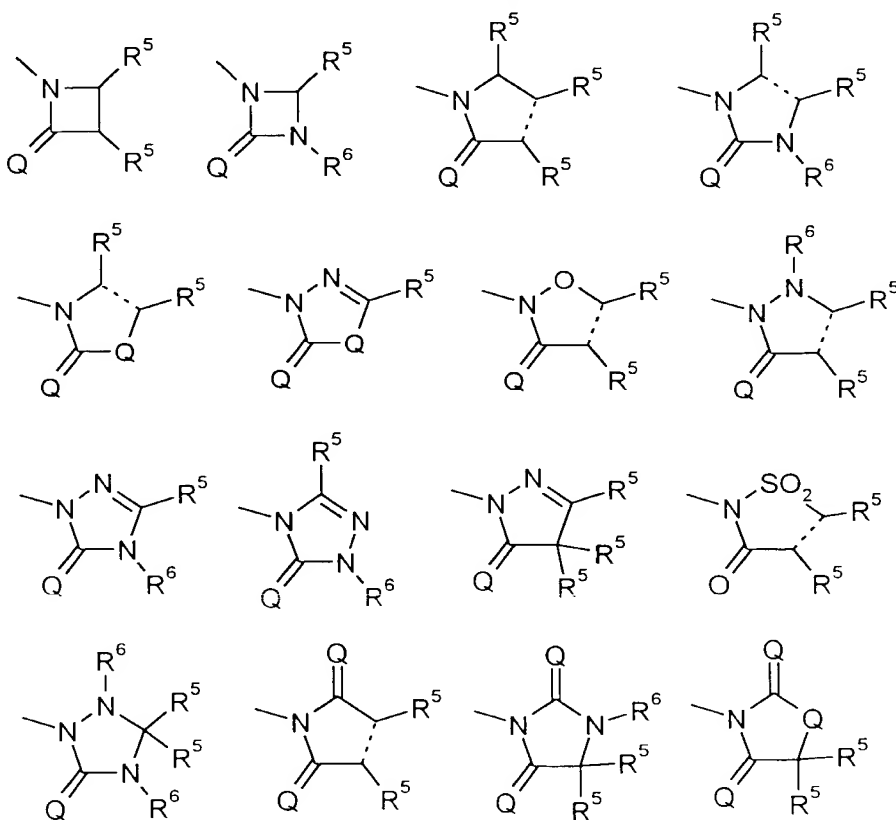
20 R<sup>2</sup> für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht, oder zusammen mit R<sup>1</sup> für Alkandiyl (Alkylen) mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen steht, wobei in diesem Fall m für 1 steht und R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> am gleichen Kohlenstoffatom („geminal“) oder an zwei benachbarten Kohlenstoffatomen („vicinal“) stehen,

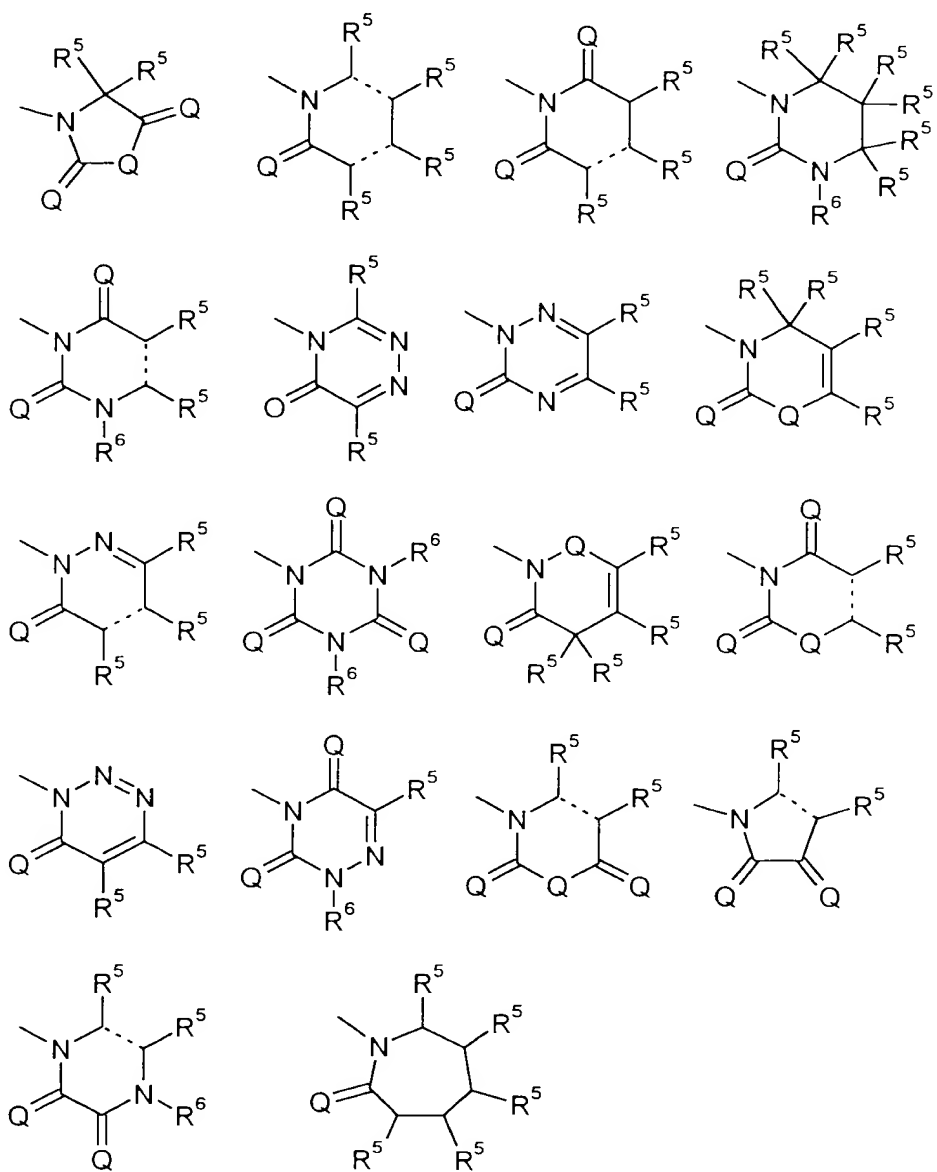
25 R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, oder für Alkylamino, Dialkylamino oder Dialkyl-

aminosulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,

$R^4$  für Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, für jeweils  
 5 gegebenenfalls durch Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfinyl oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, oder für Alkylamino, Dialkylamino oder Dialkylaminosulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht, und

10 Z für eine der nachstehenden heterocyclischen Gruppierungen steht





5

worin jeweils die gestrichelt gezeichnete Bindung eine Einfachbindung oder eine Doppelbindung ist,

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

10

$R^5$  für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Cyano, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfinyl oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl, Alkyl-

5 carbonyl, Alkoxy, Alkoxy-carbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl, Alkinyl, Alkenyloxy, Alkenylthio oder Alkenylamino mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkenyl- bzw. Alkinylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Cycloalkyloxy, Cycloalkylthio oder Cycloalkylamino mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls bis zu 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Phenyl, Phenyl-oxy, Phenylthio, Phenylamino, Benzyl, Benzyloxy, Benzylthio oder Benzylamino steht, und

15

R<sup>6</sup> für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkylidenamino mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylamino, Dialkylamino oder Alkanoylamino mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl, Alkinyl oder Alkenyloxy mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkenyl- bzw. Alkinylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl oder Cycloalkylamino mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls bis zu 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Phenyl oder Benzyl steht, oder zusammen mit einem benachbarten Rest R<sup>5</sup> oder R<sup>6</sup> für gegebenenfalls durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiertes Alkandiyl mit 3 bis 5 Kohlenstoffatomen steht, oder - für den Fall, daß zwei benachbarte Reste R<sup>5</sup> und R<sup>5</sup> sich an einer Doppelbindung befinden - zusammen mit dem benachbarten Rest R<sup>5</sup> auch für eine Benzogruppierung steht,

20

25

30

- einschließlich aller möglichen tautomeren Formen der Verbindungen der allgemeinen Formel (I).

5 Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise auch Natrium-, Kalium-, Magnesium-, Calcium-, Ammonium-, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-ammonium-, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)-ammonium-, Tri-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)-ammonium-, Tetra-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)-ammonium, Tri-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)-sulfonium-, C<sub>5</sub>- oder C<sub>6</sub>-Cycloalkyl-ammonium- und Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl)-benzyl-  
10 ammonium-Salze von Verbindungen der Formel (I), in welcher m, n, A, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und Z die oben vorzugsweise angegebenen Bedeutungen haben.

Gegenstand der Erfindung sind insbesondere Verbindungen der Formel (I), in welcher

15 m für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

20 A für eine Einfachbindung, Methylen, Ethylen (Ethan-1,1-diyl) oder Dimethylen (Ethan-1,2-diyl) steht,

25 R<sup>1</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, oder für Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl steht,

30 R<sup>2</sup> für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, oder zusammen mit R<sup>1</sup> für Methylen, Ethan-1,1-diyl (Ethylen, -CH(CH<sub>3</sub>)-), Ethan-1,2-diyl (Dimethylen, -CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-), Propan-1,3-diyl (Trimethylen, -CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-), Butan-1,4-diyl (Tetramethylen, -CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-) oder Pentan-1,5-diyl (Pentamethylen, -CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-) steht, wobei in diesem Fall m für 1 steht und R<sup>1</sup>



und R<sup>2</sup> am gleichen Kohlenstoffatom („geminal“) oder an zwei benachbarten Kohlenstoffatomen („vicinal“) stehen,

5 R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, oder für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Dimethylaminosulfonyl oder Diethylaminosulfonyl steht,

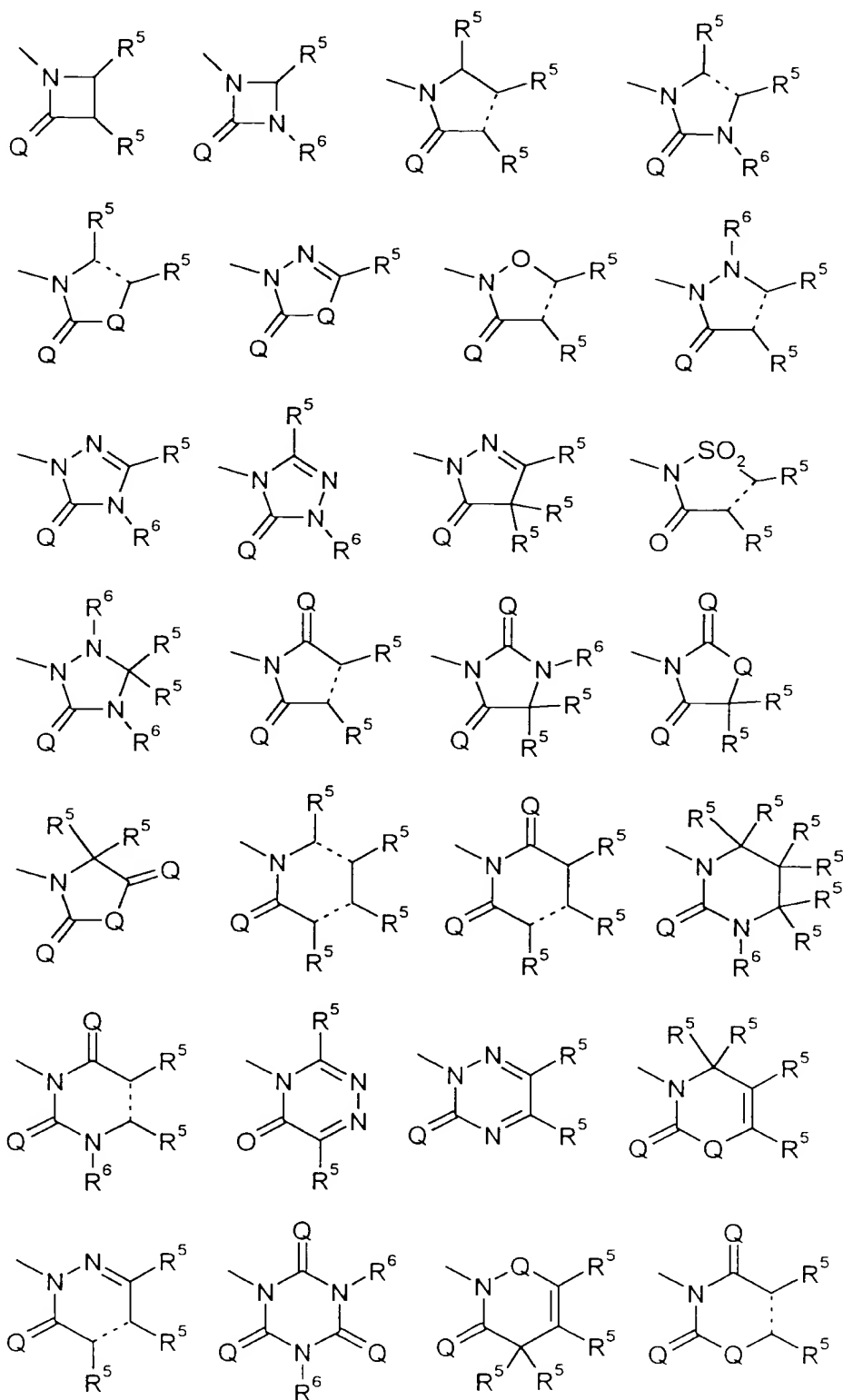
10

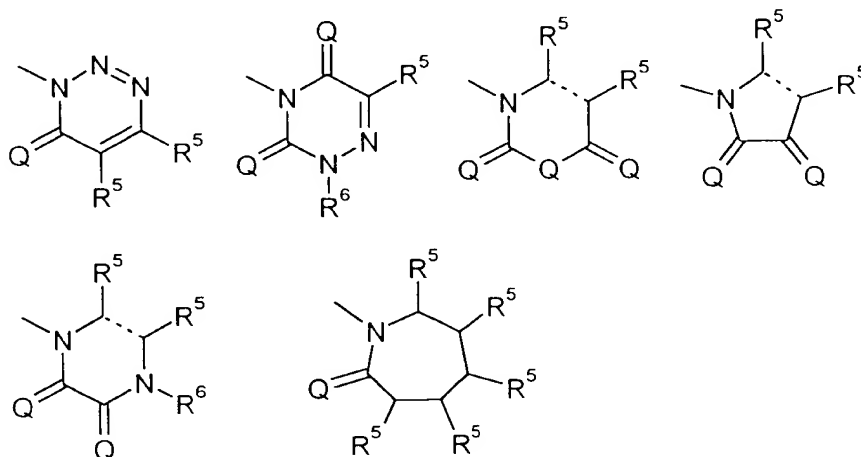
15

20 R<sup>4</sup> für Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, oder für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Dimethylaminosulfonyl oder Diethylaminosulfonyl steht, und

25

30 Z für eine der nachstehenden heterocyclischen Gruppierungen steht





worin jeweils die gestrichelt gezeichnete Bindung eine Einfachbindung oder eine Doppelbindung ist,

5

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

10

R<sup>5</sup> für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Di-n-propylamino oder Di-i-propylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl, Propenyloxy, Butenyloxy, Propenylthio, Butenylthio, Propenylamino oder Butenylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl,

20

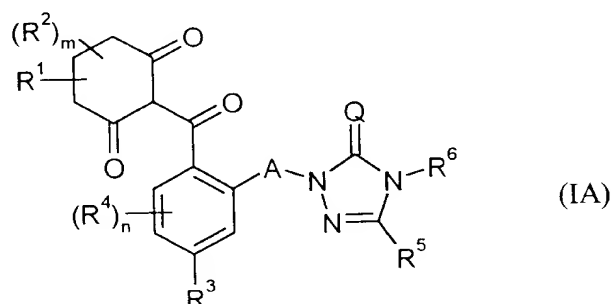
5 Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, Cyclopropyl-  
oxy, Cyclobutyloxy, Cyclopentyloxy, Cyclohexyloxy, Cyclopropylthio,  
Cyclobutylthio, Cyclopentylthio, Cyclohexylthio, Cyclopropylamino,  
Cyclobutylamino, Cyclopentylamino oder Cyclohexylamino, oder für  
jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, n- oder i-  
Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy  
substituiertes Phenyl, Phenyloxy, Phenylthio, Phenylamino, Benzyl,  
Benzyloxy, Benzylthio oder Benzylamino steht, und

10  $R^6$  für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für jeweils gegebenenfalls durch  
Fluor und/oder Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl,  
Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-  
Propoxy, Methylamino, Ethylamino oder Dimethylamino, für jeweils  
15 gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Ethenyl,  
Propenyl, Ethinyl, Propinyl oder Propenyloxy, für jeweils gegebenen-  
falls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Cyclopropyl, Cyclo-  
butyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl,  
Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, oder für jeweils gegebenenfalls  
20 durch Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-  
Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes Phenyl oder  
Benzyl steht, oder zusammen mit einem benachbarten Rest  $R^5$  oder  $R^6$   
für jeweils gegebenenfalls durch Methyl und/oder Ethyl substituiertes  
Propan-1,3-diyl (Trimethylen) oder Butan-1,4-diyl (Tetramethylen)  
steht, oder - für den Fall, daß zwei benachbarte Reste  $R^5$  und  $R^5$  sich  
25 an einer Doppelbindung befinden - zusammen mit dem benachbarten  
Rest  $R^5$  auch für eine Benzogruppierung steht,

- einschließlich aller möglichen tautomeren Formen der Verbindungen der allgemeinen  
Formel (I).

30

Eine ganz besonders bevorzugte Gruppe sind die Verbindungen der allgemeinen  
Formel (IA),



in welcher

- 5      m      für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,
- n      für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,
- A      für eine Einfachbindung oder für Methylen steht,
- 10      Q      für Sauerstoff oder Schwefel steht,
- R<sup>1</sup>      für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,
- 15      R<sup>2</sup>      für Methyl steht,
- R<sup>3</sup>      für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluor-  
                 methyl, Methoxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methyl-  
                 sulfonylmethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methyl-  
20            thio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl  
                 oder Dimethylaminosulfonyl steht,
- R<sup>4</sup>      für Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Meth-  
                 oxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methylsulfonylmethyl,  
25            Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio,

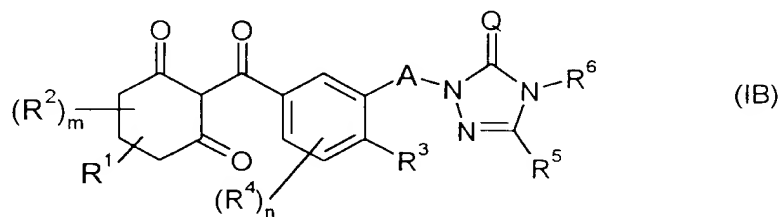
Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht,

5  $R^5$  für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, oder für Cyclopropyl steht, und

10  $R^6$  für Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy oder Cyclopropyl steht.

Die Verbindungen der Formel (IA), bei welchen A für Methylen steht sind hierbei ganz besonders hervorzuheben.

15 Eine weitere ganz besonders bevorzugte Gruppe sind die Verbindungen der allgemeinen Formel (IB),



in welcher

20 m für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

25 A für eine Einfachbindung oder für Methylen steht,

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

$R^1$  für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,

R<sup>2</sup> für Methyl steht,

5 R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluor-  
methyl, Methoxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methyl-  
sulfonylmethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methyl-  
thio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl  
oder Dimethylaminosulfonyl steht,

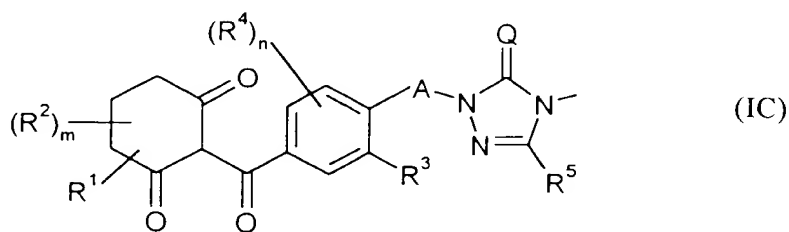
10 R<sup>4</sup> für Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Meth-  
oxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methylsulfonylmethyl,  
Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio,  
Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Dimethyl-  
aminosulfonyl steht,

15 R<sup>5</sup> für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder  
i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethyl-  
sulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-  
Propylsulfonyl, oder für Cyclopropyl steht, und

20 R<sup>6</sup> für Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy oder Cyclopropyl steht.

Die Verbindungen der Formel (IB), bei welchen A für Methylen steht sind hierbei  
ganz besonders hervorzuheben.

25 Eine weitere ganz besonders bevorzugte Gruppe sind die Verbindungen der allge-  
meinen Formel (IC),



in welcher

m für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

A für eine Einfachbindung oder für Methylen steht,

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,

R<sup>2</sup> für Methyl steht,

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluor-methyl, Methoxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methyl-sulfonylmethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methyl-thio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht,

R<sup>4</sup> für Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Meth-oxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methylsulfonylmethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Dimethyl-aminosulfonyl steht,



R<sup>5</sup> für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, oder für Cyclopropyl steht, und

5

R<sup>6</sup> für Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy oder Cyclopropyl steht.

10

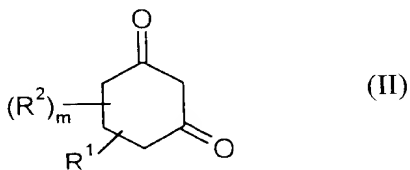
Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangs- oder Zwischenprodukte. Diese Restdefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.

15

Die neuen substituierten Benzoylcyclohexandione der allgemeinen Formel (I) zeichnen sich durch starke und selektive herbizide Wirksamkeit aus.

20

Man erhält die neuen substituierten Benzoylcyclohexandione der allgemeinen Formel (I), wenn man 1,3-Cyclohexandion oder dessen Derivate der allgemeinen Formel (II),

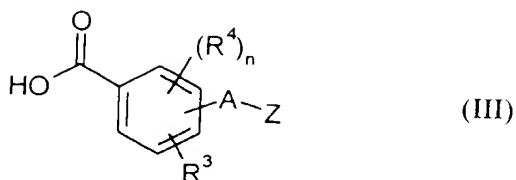


in welcher

m, R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,

25

mit substituierten Benzoesäuren der allgemeinen Formel (III),



in welcher

n, A, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und Z die oben angegebene Bedeutung haben,

5

in Gegenwart eines Dehydratisierungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, umsetzt,

10

und gegebenenfalls im Anschluß daran an den so erhaltenen Verbindungen der Formel (I) im Rahmen der Substituentendefinition auf übliche Weise elektrophile oder nucleophile bzw. Oxidations- oder Reduktionsreaktionen durchführt oder die Verbindungen der Formel (I) auf übliche Weise in Salze überführt.

15

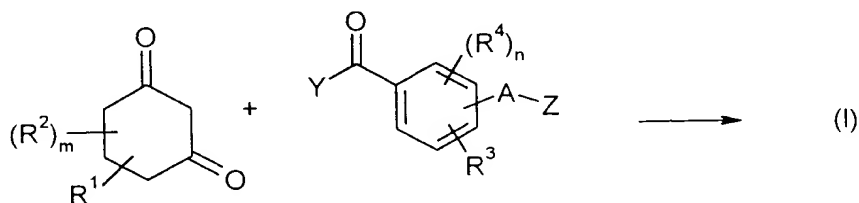
Die Verbindungen der Formel (I) können nach üblichen Methoden in andere Verbindungen der Formel (I) gemäß obiger Definition umgewandelt werden, beispielsweise durch nucleophile Substitution (z.B. R<sup>5</sup>: Cl → OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, SCH<sub>3</sub>) oder durch Oxidation (z.B. R<sup>5</sup>: CH<sub>2</sub>SCH<sub>3</sub> → CH<sub>2</sub>S(O)CH<sub>3</sub>).

20

Die Verbindungen der allgemeinen Formel (I) können prinzipiell auch wie im Folgenden schematisch dargestellt synthetisiert werden:

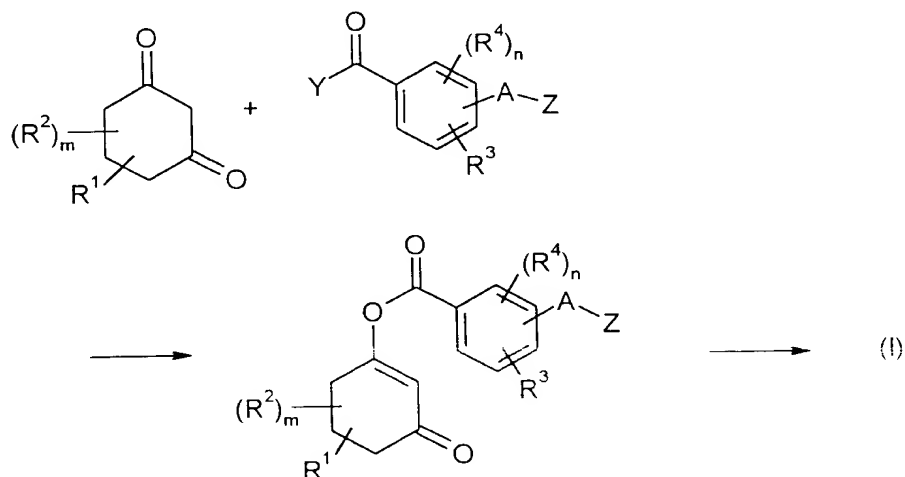
Umsetzung von 1,3-Cyclohexandion oder dessen Derivaten der allgemeinen Formel (II) - oben - mit reaktiven Derivaten der substituierten Benzoesäuren der allgemeinen Formel (III) - oben - insbesondere mit entsprechenden Carbonsäurechloriden, Carbonsäureanhydriden, Carbonsäure-cyaniden, Carbonsäure-methylestern oder -ethylestern - gegebenenfalls in Gegenwart von Reaktionshilfsmitteln, wie z.B. Triethylamin (und gegebenenfalls zusätzlich Zinkchlorid), und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Methylenchlorid:

25

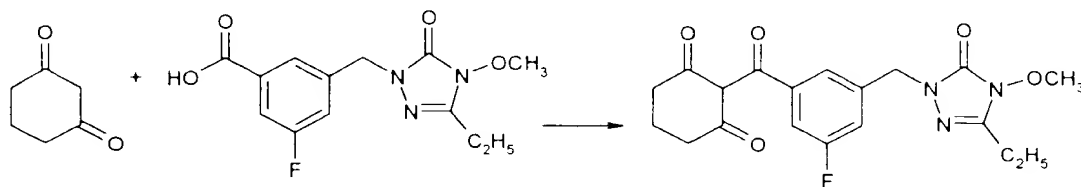


(Y z.B. CN, Cl)

- 5 Bei den oben skizzierten Umsetzungen zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) kommt es im allgemeinen neben der erwünschten C-Benzoylierung am Cyclohexandion auch zu einer O-Benzoylierung - vgl. nachstehendes Formelschema (vgl. Synthesis 1978, 925-927; Tetrahedron Lett. 37 (1996), 1007-1009, WO-A-91/05469). Die hierbei gebildeten O-Benzoyl-Verbindungen werden jedoch unter
- 10 den Reaktionsbedingungen des erfindungsgemäßen Verfahrens zu den entsprechenden C-Benzoyl-Verbindungen der Formel (I) isomerisiert.

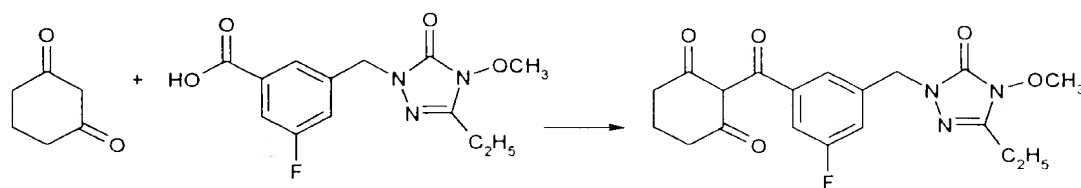


- 15 Verwendet man beispielsweise 1,3-Cyclohexandion und 2-(3-Carboxy-5-fluorbenzyl)-5-ethyl-4-methoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren durch das folgende Formelschema skizziert werden:



Die beim erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Cyclohexandione sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der Formel (II) haben m, R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> vorzugsweise

5



Die beim erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Cyclohexandione sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der Formel (II) haben m, R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für m, R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> angegeben wurden.

10

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (II) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden.

15

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden substituierten Benzoessäuren sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der Formel (III) haben n, A, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und Z vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für n, A, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und Z angegeben wurden.

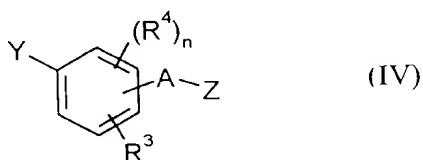
20

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (III) sind mit Ausnahme von 2-(5-Carboxy-2,4-dichlor-phenyl)-4-difluormethyl-5-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-

25

3-on - alias 2,4-Dichlor-5-(4-difluormethyl-4,5-dihydro-3-methyl-5-oxo-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-benzoesäure (CAS-Reg.-Nr. 90208-77-8) und 2-(5-Carboxy-2,4-dichlor-phenyl)-4,5-dimethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on - alias 2,4-Dichlor-5-(4,5-dihydro-3,4-dimethyl-5-oxo-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-benzoesäure (CAS-Reg.-Nr. 90208-76-7) - noch nicht aus der Literatur bekannt. Sie sind unter Ausnahme von 2-(5-Carboxy-2,4-dichlor-phenyl)-4-difluormethyl-5-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und 2-(5-Carboxy-2,4-dichlor-phenyl)-4,5-dimethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on (vgl. JP-A-58225070 - zitiert in Chem. Abstracts 100:209881, JP-A-02015069 - zitiert in Chem. Abstracts 113:23929) als neue Stoffe auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Man erhält die neuen substituierten Benzoesäuren der allgemeinen Formel (III), wenn man Benzoesäurederivate der allgemeinen Formel (IV),



in welcher

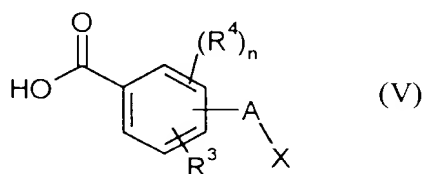
n, A, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> und Z die oben angegebene Bedeutung haben, und

Y für Cyano, Carbamoyl, Halogencarbamoyl oder Alkoxycarbonyl steht,

mit Wasser, gegebenenfalls in Gegenwart eines Hydrolysehilfsmittels, wie z.B. Schwefelsäure, bei Temperaturen zwischen 50°C und 120°C umgesetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die als Vorprodukte benötigten Benzoesäurederivate der allgemeinen Formel (IV) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. DE-A-3839480, DE-A-4239296, EP-A-597360, EP-A-609734, DE-A-4303676, EP-A-617026, DE-A-4405614, US-A-5378681).

Man erhält die neuen substituierten Benzoesäuren der allgemeinen Formel (III) auch, wenn man Halogen(alkyl)benzoesäuren der allgemeinen Formel (V),



5

in welcher

$n$ ,  $A$ ,  $R^3$  und  $R^4$  die oben angegebene Bedeutung haben und

10

$X$  für Halogen (insbesondere Fluor, Chlor oder Brom) steht,

mit Verbindungen der allgemeinen Formel (VI),



15

in welcher

$Z$  die oben angegebene Bedeutung hat,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittel, wie z.B. Triethylamin oder Kaliumcarbonat, und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Aceton, Acetonitril, N,N-Dimethyl-formamid oder N,N-Dimethyl-acetamid, bei Temperaturen zwischen 50°C und 200°C umgesetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

25

An Stelle der Halogen(alkyl)benzoesäuren der allgemeinen Formel (V) können analog zur oben beschriebenen Methodik auch entsprechende Nitrile, Amide und Ester - insbesondere die Methylester oder die Ethylester - mit Verbindungen der allgemeinen Formel (VI) umgesetzt werden. Durch anschließende Hydrolyse nach üblichen

Methoden, beispielsweise durch Umsetzung mit wässrig-ethanolischer Kalilauge, können dann die entsprechenden substituierten Benzoesäuren erhalten werden.

5 Die als Vorprodukte benötigten Halogen(alkyl)benzoesäuren der Formel (V) - bzw. entsprechende Nitrile oder Ester - sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. EP-A-90369, EP-A-93488, EP-A-399732, EP-A-480641, EP-A-609798, EP-A-763524, DE-A-2126720, WO-A-93/03722, WO-A-97/38977, US-A-3978127, US-A-4837333).

10 Die weiter als Vorprodukte benötigten Verbindungen der allgemeinen Formel (VI) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden.

15 Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung der neuen substituierten Benzoylcyclohexandione der allgemeinen Formel (I) wird unter Verwendung eines Dehydratisierungsmittels durchgeführt. Es kommen hierbei die üblichen zur Bindung von Wasser geeigneten Chemikalien in Betracht.

Als Beispiele hierfür seien Dicyclohexylcarbodiimid und Carbonyl-bis-imidazol genannt.

20 Als besonders gut geeignetes Dehydratisierungsmittel sei Dicyclohexylcarbodiimid genannt.

25 Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung der neuen substituierten Benzoylcyclohexandione der allgemeinen Formel (I) wird gegebenenfalls unter Verwendung eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt.

Als Beispiele hierfür seien Natriumcyanid, Kaliumcyanid, Acetoncyanhydrin, 2-Cyano-2-(trimethylsilyloxy)-propan und Trimethylsilylcyanid genannt.

30 Als besonders gut geeignetes weiteres Reaktionshilfsmittel sei Trimethylsilylcyanid genannt.

Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung der neuen substituierten Benzoyl-cyclohexandione der allgemeinen Formel (I) wird gegebenenfalls unter Verwendung eines weiteren Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Als weitere Reaktionshilfsmittel für  
5 das erfindungsgemäße Verfahren kommen im allgemeinen basische organische Stickstoffverbindungen, wie beispielsweise Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Ethyl-diisopropylamin, N,N-Dimethyl-cyclohexylamin, Dicyclohexylamin, Ethyl-dicyclohexylamin, N,N-Dimethyl-anilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 3,4-Dimethyl- und 3,5-Dimethyl-pyridin, 5-Ethyl-2-methyl-pyridin, 4-Dimethylamino-pyridin, N-Methyl-piperidin, 1,4-Diazabicyclo[2,2,2]-octan (DABCO), 1,5-Diazabicyclo[4,3,0]-non-5-en (DBN), oder 1,8-Diazabicyclo[5,4,0]-undec-7-en (DBU) in Betracht.

15 Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens kommen vor allem inerte organische Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan oder 1,2-Dichlor-ethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-eton; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Butyronitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methyl-formanilid, N-Methyl-pyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid;  
20 Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man  
30 bei Temperaturen zwischen 0°C und 150°C, vorzugsweise zwischen 10°C und 120°C.



Das erfindungsgemäße Verfahren wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, das erfindungsgemäße Verfahren unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - durchzuführen.

5

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens werden die Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Umsetzung wird im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Dehydratisierungsmittels durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird im allgemeinen mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung wird nach üblichen Methoden durchgeführt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

10

15

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defolianten, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

20

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

25

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

30

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eignen sich insbesondere zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen Kulturen sowohl im Vorauf- als auch im Nachauf-Verfahren.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum erzeugenden Mitteln.

5

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

10

15

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolyglykoether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

20

25

30

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospho-

lipide, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

5 Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

10 Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

15 Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise

Acetochlor, Acifluorfen(-sodium), Aclonifen, Alachlor, Alloxydim(-sodium), Ametryne, Amidochlor, Amidosulfuron, Anilofos, Asulam, Atrazine, Azafenidin, 20 Azimsulfuron, Benazolin(-ethyl), Benfuresate, Bensulfuron(-methyl), Bentazon, Benzofenap, Benzoylprop(-ethyl), Bialaphos, Bifenox, Bispyribac(-sodium), Bromobutide, Bromofenoxim, Bromoxynil, Butachlor, Butroxydim, Butylate, Cafenstrole, Caloxydim, Carbetamide, Carfentrazone(-ethyl), Chlormethoxyfen, Chloramben, Chloridazon, Chlorimuron(-ethyl), Chlornitrofen, Chlorsulfuron, Chlortoluron, Cini- 25 don(-ethyl), Cinmethylin, Cinosulfuron, Clethodim, Clodinafop(-propargyl), Clomazone, Clomeprop, Clopyralid, Clopyrasulfuron(-methyl), Cloransulam(-methyl), Cumyluron, Cyanazine, Cybutryne, Cycloate, Cyclosulfamuron, Cycloxydim, Cyhalofop(-butyl), 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Desmedipham, Diallate, Dicamba, Diclofop(-methyl), Diclosulam, Diethatyl(-ethyl), Difenzoquat, Diflufenican, Diflufenzopyr, 30 Dimefuron, Dimepiperate, Dimethachlor, Dimethametryn, Dimethenamid, Dimexyflam, Dinitramine, Diphenamid, Diquat, Dithiopyr, Diuron, Dymron, Epoprodan, EPTC, Esprocarb, Ethalfluralin, Ethametsulfuron(-methyl), Ethofumesate, Ethoxyfen,

Ethoxysulfuron, Etobenzanid, Fenoxaprop(-P-ethyl), Flamprop(-isopropyl), Flamprop(-isopropyl-L), Flamprop(-methyl), Flazasulfuron, Fluazifop(-P-butyl), Fluazolate, Flucarbazone, Flufenacet, Flumetsulam, Flumiclorac(-pentyl), Flumioxazin, Flumipropyn, Flumetsulam, Fluometuron, Fluorochloridone, Fluoroglycofen(-ethyl),  
 5 Flupoxam, Flupropacil, Flurpysulfuron(-methyl, -sodium), Flurenol(-butyl), Fluridone, Fluroxypyr(-meptyl), Flurprimidol, Flurtamone, Fluthiacet(-methyl), Fluthiamide, Fomesafen, Glufosinate(-ammonium), Glyphosate(-isopropylammonium), Halosafen, Haloxyfop(-ethoxyethyl), Haloxyfop(-P-methyl), Hexazinone, Imazamethabenz(-methyl), Imazamethapyr, Imazamox, Imazapic, Imazapyr, Imazaquin,  
 10 Imazethapyr, Imazosulfuron, Iodosulfuron, Ioxynil, Isopropalin, Isoproturon, Isouron, Isoxaben, Isoxachlortole, Isoxaflutole, Isoxapyrifop, Lactofen, Lenacil, Linuron, MCPA, MCPP, Mefenacet, Mesotrione, Metamitron, Metazachlor, Methabenzthiazuron, Metobenzuron, Metobromuron, (alpha-)Metolachlor, Metosulam, Metoxuron, Metribuzin, Metsulfuron(-methyl), Molinate, Monolinuron, Naproanilide, Napropamide, Neburon, Nicosulfuron, Norflurazon, Orbencarb, Oryzalin, Oxadiargyl, Oxadiazon, Oxasulfuron, Oxaziclomefone, Oxyfluorfen, Paraquat, Pelargonsäure, Pendi-  
 15 methalin, Pentoxazone, Phenmedipham, Piperophos, Pretilachlor, Primisulfuron(-methyl), Prometryn, Propachlor, Propanil, Propaquizafop, Propisochlor, Propyzamide, Prosulfocarb, Prosulfuron, Pyraflufen(-ethyl), Pyrazolate, Pyrazosulfuron(-ethyl), Pyrazoxyfen, Pyribenzoxim, Pyributicarb, Pyridate, Pyriminobac(-methyl), Pyriithiobac(-sodium), Quinchlorac, Quinmerac, Quinoclamine, Quizalofop(-P-ethyl), Quizalofop(-P-tefuryl), Rimsulfuron, Sethoxydim, Simazine, Simetryn, Sulcotrione, Sulfentrazone, Sulfometuron(-methyl), Sulfosate, Sulfosulfuron, Tebutam, Tebuthiuron, Tepraloxym, Terbutylazine, Terbutryn, Thenylchlor, Thia-  
 20 fluamide, Thiazopyr, Thidiazimin, Thifensulfuron(-methyl), Thiobencarb, Tiocarbamil, Tralkoxydim, Triallate, Triasulfuron, Tribenuron(-methyl), Triclopyr, Tridiphane, Trifluralin und Triflursulfuron.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstruktur-verbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

5

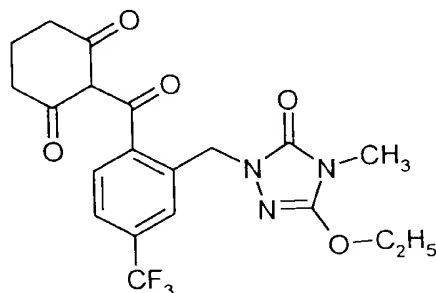
Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

10

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 5 kg pro ha.

15

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

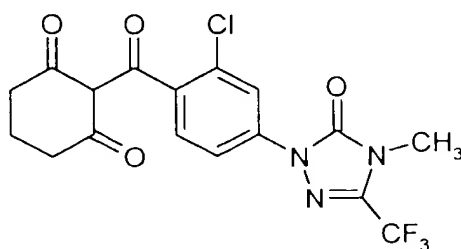
**Herstellungsbeispiele:****Beispiel 1**

- 5 1,2 g (3,48 mMol) 5-Ethoxy-4-methyl-2-(2-carboxy-5-trifluormethyl-benzyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 30 ml Acetonitril suspendiert und mit 0,39 g (3,48 mMol) 1,3-Cyclohexandion und 0,76 g (3,7 mMol) Dicyclohexylcarbodiimid (DCC) bei Raumtemperatur (ca. 20°C) versetzt. Das Reaktionsgemisch wird über Nacht (ca. 15 Stunden) bei Raumtemperatur gerührt und dann mit 1,0 ml (7,0 mMol)
- 10 Triethylamin und 0,10 ml (1,39 mMol) Trimethylsilylcyanid versetzt. Nach 3 Stunden bei Raumtemperatur wird mit 100 ml 5%iger wäßriger Natriumcarbonatlösung verrührt, der sich abscheidende Dicyclohexylharnstoff abgesaugt und die alkalische wäßrige Phase mehrfach mit Ethylacetat extrahiert. Dann wird die wäßrige Phase mit 35%iger Salzsäure auf pH 2 eingestellt und mehrfach mit Methylenchlorid extrahiert.
- 15 Die Methylenchloridphasen werden über Natriumsulfat getrocknet und eingeeengt.

Man erhält 0.8 g (52 % der Theorie) 5-Ethoxy-4-methyl-2-[2-(2,6-dioxo-cyclohexyl-carbonyl)-5-trifluormethyl-benzyl]-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als amorphen Rückstand.

20

logP (bei pH=2 bestimmt): 2,70.

**Beispiel 2**

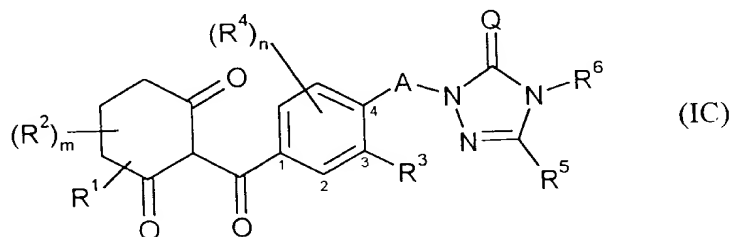
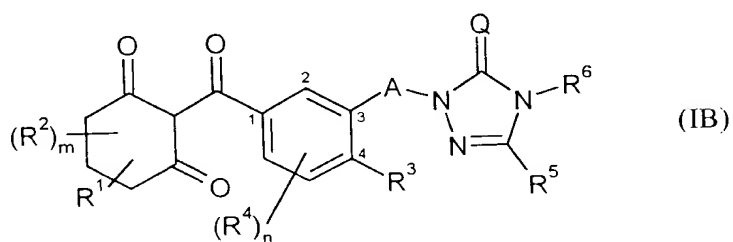
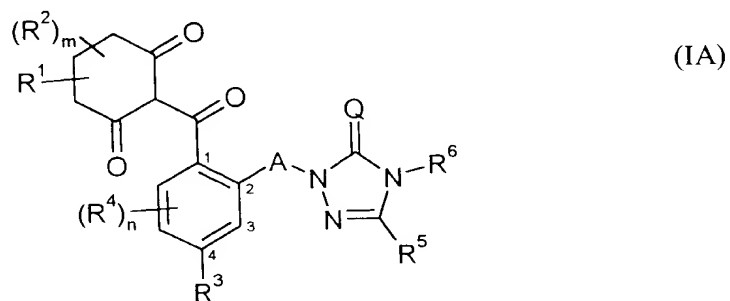
Zu einer Suspension aus 2,15 g (6,5 mMol) 2-(4-Carboxy-3-chlor-phenyl)-4-methyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on, 0,83 g (7,2 mMol) 1,3-Cyclohexandion und 40 ml Acetonitril wird eine Lösung von 1,5 g (7,2 mMol) Dicyclohexylcarbodiimid in 40 ml Acetonitril gegeben und die Reaktionsmischung wird 16 Stunden bei 20°C gerührt. Dann werden 1,3 g (13 mMol) Triethylamin und 0,26 g (2,6 mMol) Trimethylsilylcyanid dazu gegeben und das Reaktionsgemisch wird weitere 4 Stunden bei 20°C gerührt. Dann wird mit 180 ml 2%iger wässriger Sodalösung verrührt und abgesaugt. Die Mutterlauge wird mit Essigsäureethylester extrahiert. Dann wird die wässrige Phase mit 2N-Salzsäure angesäuert und mit Methylenchlorid extrahiert. Die organische Phase wird getrocknet, im Wasserstrahlvakuum eingeeengt und mit Diethylether/Petrolether digeriert. Das kristallin angefallene Produkt wird durch Absaugen isoliert.

Man erhält 1,6 g (59% der Theorie) 2-[4-(2,6-Dioxocyclohexylcarbonyl)-3-chlor-phenyl]-4-methyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 182°C.





logP (bei pH=2 bestimmt): 3,13.



Analog zu den Herstellungsbeispielen 1 und 2 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der Formel (I) - bzw. der Formeln (IA), (IB) oder (IC) - hergestellt werden.









**Tabelle 1:** Beispiele für die Verbindungen der Formeln (I), (IA), (IB), (IC)

Bsp.- Nr.	A	Q	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	(Position) R <sup>3</sup>	(Position) (R <sup>4</sup> ) <sub>n</sub>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	(Formel) Physikal. Daten
3	-	O	H	H	H	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IC) logP: 2,41 <sup>a</sup> )
4	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) CF <sub>3</sub>	H			(IA) logP: 2,41 <sup>a</sup> )
5	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	H			(IB) Fp.: 153°C

Bsp.- Nr.	A	Q	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	(Position) R <sup>3</sup>	(Position) (R <sup>4</sup> ) <sub>n</sub>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	(Formel) Physikal. Daten
6	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) Fp.: 162°C
7	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Cl	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IB) logP: 1,50 <sup>a</sup> )
8	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Cl	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IB) logP: 2,44 <sup>a</sup> )
9	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Cl	H			(IB) logP: 2,23 <sup>b</sup> )
10	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Br	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	(IA) logP: 2,68 <sup>a</sup> )
11	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) F	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 1,73 <sup>a</sup> )
12	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) F	H	SCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 1,99 <sup>a</sup> )
13	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) F	H	SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 1,83 <sup>a</sup> )
14	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Br	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IB) logP: 1,57 <sup>a</sup> )
15	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Br	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	(IB) Fp.: 132°C

Bsp.- Nr.	A	Q	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	(Position) R <sup>3</sup>	(Position) (R <sup>4</sup> ) <sub>n</sub>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	(Formel) Physikal. Daten
16	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Br	H			(IB) logP 2,31a)
17	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Cl	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		(IA) logP 3,03a)
18	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Cl	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 2,75a)
19	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Cl	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	(IA) logP: 2,60a)
20	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) NO <sub>2</sub>	H	SCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 2,04a)
21	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) CF <sub>3</sub>	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		(IA) logP: 3,02a)
22	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) CF <sub>3</sub>	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	(IA) logP: 2,91a)
23	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) CF <sub>3</sub>	H	SCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 2,59a)
24	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) OCH <sub>3</sub>	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 1,99a)
25	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) OCH <sub>3</sub>	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	(IA) logP: 2,18a)

Bsp. - Nr.	A	Q	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	(Position) R <sup>3</sup>	(Position) (R <sup>4</sup> ) <sub>n</sub>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	(Formel) Physikal. Daten
26	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Br	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 2,46 <sup>a</sup> )
27	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) Br	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 2,85 <sup>a</sup> )
28	CH <sub>2</sub>	O	H	H	H	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 2,33 <sup>a</sup> )
29	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) CF <sub>3</sub>	H	OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 2,35 <sup>a</sup> )
30	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) F	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 2,47 <sup>a</sup> )
31	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) F	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	(IA) logP: 2,28 <sup>a</sup> )
32	CH <sub>2</sub>	O	H	H	(4) F	H	OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 1,76 <sup>a</sup> )
33	CH <sub>2</sub>	O	H	H	H	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 1,93 <sup>a</sup> )
34	CH <sub>2</sub>	O	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IA) logP: 1,61 <sup>a</sup> )

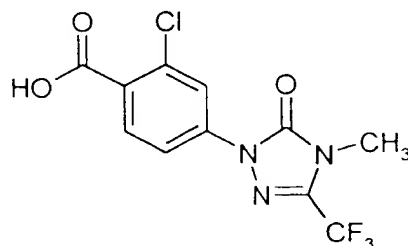
Die Bestimmung der in Tabelle 1 angegebenen logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

- 5 (a) Eluenten für die Bestimmung im sauren Bereich: 0,1% wässrige Phosphorsäure, Acetonitril; linearer Gradient von 10% Acetonitril bis 90% Acetonitril - entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit a) markiert.

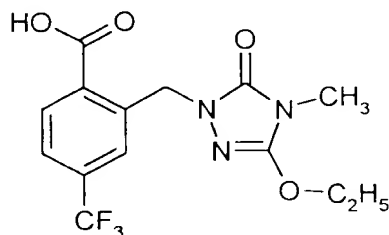
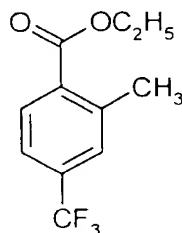
- 10 (b) Eluenten für die Bestimmung im neutralen Bereich: 0,01-molare wässrige Phosphatpuffer-Lösung, Acetonitril; linearer Gradient von 10% Acetonitril bis 90% Acetonitril - entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit b) markiert.

- 15 Die Eichung erfolgte mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren logP-Werte bekannt sind (Bestimmung der logP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

- 20 Die lambda-max-Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.

**Ausgangsstoffe der Formel (III):****Beispiel (III-1)**

- 5 4,5 g (15 mMol) 2-(3-Chlor-4-cyano-phenyl)-4-methyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 80 ml 60%iger Schwefelsäure aufgenommen und die Mischung wird 6 Stunden unter Rückfluß erhitzt. Nach Abkühlen auf Raumtemperatur wird das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.
- 10 Man erhält 4,5 g (91% der Theorie) 2-(3-Carboxy-4-chlor-phenyl)-4-methyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 223°C.

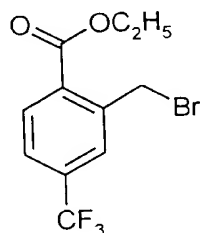
**Beispiel (III-2)****Stufe 1**

10 g (49 mMol) 2-Methyl-4-trifluormethyl-benzoesäure werden in 150 ml Ethanol gelöst und mit 1 ml konz. Schwefelsäure versetzt. Nach 24 Stunden Erhitzen unter Rückfluß wird die Lösung eingeeengt, in Methylenchlorid aufgenommen und mit ge-

sättigter wäßriger Natriumhydrogencarbonat-Lösung extrahiert. Die Methylenchlorid-Phase wird über Natriumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingengt.

5 Man erhält 9 g (80% der Theorie) 2-Methyl-4-trifluormethyl-benzoesäure-ethylester als amorphen Rückstand.

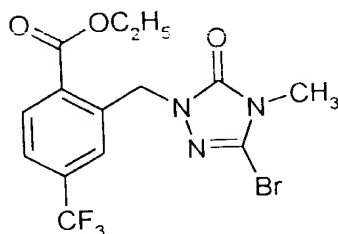
### Stufe 2



10 9 g (39 mMol) 2-Methyl-4-trifluormethyl-benzoesäure-ethylester werden in 200 ml Tetrachlormethan gelöst und mit 7 g (39 mMol) *N*-Brom-succinimid und 0.1 g Dibenzoylperoxid versetzt. Nach 6 Stunden Erhitzen unter Rückfluß wird das abgeschiedene Succinimid abfiltriert und das Filtrat im Wasserstrahlvakuum eingengt.

15 Man erhält 12 g eines amorphen Rückstandes, der neben 2-Brommethyl-4-trifluormethyl-benzoesäure-ethylester noch 17% 2,2-Dibrommethyl-4-trifluormethyl-benzoesäure-ethylester und 12% 2-Methyl-4-trifluormethyl-benzoesäure-ethylester enthält.

### Stufe 3

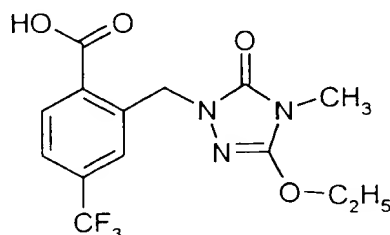


20 4 g 2-Brommethyl-4-trifluormethyl-benzoesäure-ethylester (ca. 70%ig) und 2.28 g (12,8 mMol) 5-Brom-4-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 150 ml Acetonitril gelöst, mit 5.3 g (38,4 mMol) Kaliumcarbonat versetzt und unter kräftigem Rühren 2 Stunden zum Rückfluß erhitzt. Das Reaktionsgemisch wird in Wasser aufgenommen und mit Methylenchlorid mehrfach extrahiert. Die gesammelten Methy-

lenchlorid-Phasen werden über Natriumsulfat getrocknet, im Wasserstrahlvakuum eingengt und chromatographiert.

- 5 Man erhält 2 g (38 % der Theorie) 5-Brom-4-methyl-2-(2-ethoxycarbonyl-5-trifluor-methyl-benzyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als amorphes Produkt.

#### Stufe 4



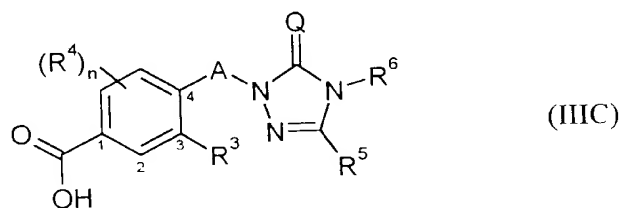
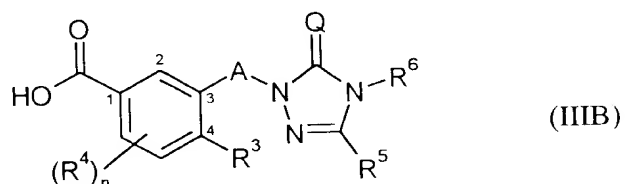
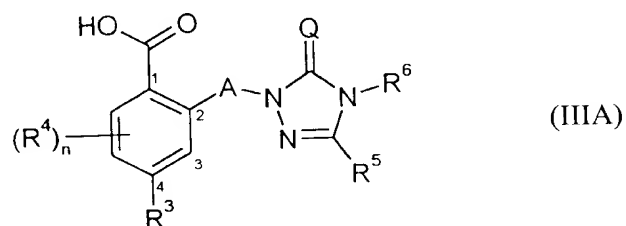
- 10 2 g (4,9 mMol) 5-Brom-4-methyl-2-(2-ethoxycarbonyl-5-trifluormethyl-benzyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 30 ml 10%iger ethanolischer Kalilauge gelöst und 2 Stunden unter Rückfluß erhitzt. Das Reaktionsgemisch wird im Wasserstrahlvakuum eingengt, in 20 ml Wasser aufgenommen und mit verdünnter Salzsäure angesäuert. Der ausfallende Feststoff wird filtriert und getrocknet.

- 15 Man erhält 1,2 g (71% der Theorie) 5-Ethoxy-4-methyl-2-(2-carboxy-5-trifluor-methyl-benzyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als festes Produkt.



logP: 2,18a)








- 20 Analog zu den Beispielen III-1 und III-2 können beispielsweise auch die nachstehend aufgeführten Verbindungen der Formel (III) - bzw. der Formeln (III-A), (IIIB) oder (IIIC) nachstehend - hergestellt werden.








**Tabelle 2:** Beispiele für die Verbindungen der Formel (III), (IIIA), (IIIB), (IIIC)

Bsp.- Nr.	A	Q	(Position) R <sup>3</sup>	(Position) (R <sup>4</sup> ) <sub>n</sub>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	(Formel) Physikal. Daten
III-3	CH <sub>2</sub>	O	(4) Cl	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA) logP: 1,17a)
III-4	CH <sub>2</sub>	O	(4) SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-5	CH <sub>2</sub>	O	(4) Cl	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA) logP: 1,39a)
III-6	CH <sub>2</sub>	O	(4) SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	H			(IIIA)
III-7	CH <sub>2</sub>	O	(4) SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)

Bsp.- Nr.	A	Q	(Position) R <sup>3</sup>	(Position) (R <sup>4</sup> ) <sub>n</sub>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	(Formel) Physikal. Daten
III-8	CH <sub>2</sub>	O	(4) CF <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-9	CH <sub>2</sub>	O	(4) CF <sub>3</sub>	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-10	CH <sub>2</sub>	O	(4) CF <sub>3</sub>	H			(IIIA)
III-11	CH <sub>2</sub>	O	(4) Cl	H			(IIIA)
III-12	CH <sub>2</sub>	O	H	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA) logP: 1,82 <sup>a</sup> )
III-13	CH <sub>2</sub>	O	(4) Br	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	(IIIA)
III-14	CH <sub>2</sub>	O	(4) F	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA) logP: 1,73 <sup>a</sup> )
III-15	CH <sub>2</sub>	O	(4) F	H	SCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-16	CH <sub>2</sub>	O	(4) F	H	SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-17	CH <sub>2</sub>	O	(4) Br	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-18	CH <sub>2</sub>	O	(4) Br	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-19	CH <sub>2</sub>	O	(4) Br	H			(IIIA)
III-20	CH <sub>2</sub>	O	(4) Cl	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		(IIIA)

Bsp.- Nr.	A	Q	(Position) R <sup>3</sup>	(Position) (R <sup>4</sup> ) <sub>n</sub>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	(Formel) Physikal. Daten
III-21	CH <sub>2</sub>	O	(4) Cl	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	(IIIA)
III-22	CH <sub>2</sub>	O	(4) NO <sub>2</sub>	H	SCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-23	CH <sub>2</sub>	O	(4) CF <sub>3</sub>	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		(IIIA)
III-24	CH <sub>2</sub>	O	(4) CF <sub>3</sub>	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	(IIIA)
III-25	CH <sub>2</sub>	O	(4) CF <sub>3</sub>	H	SCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-26	CH <sub>2</sub>	O	(4) OCH <sub>3</sub>	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	(IIIA)
III-27	CH <sub>2</sub>	O	(4) OCH <sub>3</sub>	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-28	CH <sub>2</sub>	O	(4) Br	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-29	CH <sub>2</sub>	O	(4) CF <sub>3</sub>	H	OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-30	CH <sub>2</sub>	O	(4) F	H	CF <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-31	CH <sub>2</sub>	O	(4) F	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	(IIIA)
III-32	CH <sub>2</sub>	O	(4) F	H	OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-33	CH <sub>2</sub>	O	H	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)
III-34	CH <sub>2</sub>	O	H	H	OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(IIIA)

Bsp.- Nr.	A	Q	(Position) R <sup>3</sup>	(Position) (R <sup>4</sup> ) <sub>n</sub>	R <sup>5</sup>	R <sup>6</sup>	(Formel) Physikal. Daten
III-35	CH <sub>2</sub>	O	(4) SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	H			(III-B) logP: 1,47a)

Anwendungsbeispiele:

Beispiel A

5 Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät. Nach ca. 24 Stunden wird der Boden so mit der Wirkstoffzubereitung besprüht, daß die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge pro Flächeneinheit ausgebracht wird. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 Liter Wasser pro Hektar die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge ausgebracht wird.

20 Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

25                    0 %   =   keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)  
                     100 %   =   totale Vernichtung

30 In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 1 und 10 bei teilweise guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Mais, starke Wirkung gegen Unkräuter.

**Beispiel B**

Post-emergence-Test

- 5      Lösungsmittel:      5 Gewichtsteile Aceton  
Emulgator:      1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden.

20      Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

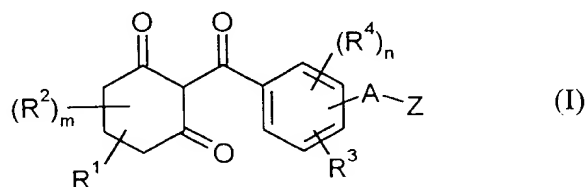
Es bedeuten:

- 0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)  
100 % = totale Vernichtung

25      In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 10 und 15 bei teilweise guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Mais, starke Wirkung gegen Unkräuter.

**Patentansprüche**

1. Substituierte Benzoylcyclohexandione der allgemeinen Formel (I),



in welcher

$m$  für die Zahlen 0, 1, 2 oder 3 steht,

$n$  für die Zahlen 0, 1, 2 oder 3 steht,

$A$  für eine Einfachbindung oder für Alkandiyl (Alkylen) steht,

$R^1$  für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl oder Alkoxy-carbonyl steht,

$R^2$  für gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht, oder zusammen mit  $R^1$  für Alkandiyl (Alkylen) steht, wobei in diesem Fall  $m$  für 1 steht und  $R^1$  und  $R^2$  am gleichen Kohlenstoffatom („geminal“) oder an zwei benachbarten Kohlenstoffatomen („vicinal“) stehen,

$R^3$  für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino oder Dialkylaminosulfonyl steht,

$R^4$  Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkyl-

sulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino oder Dialkylamino-sulfonyl steht, und

5           Z   für eine gegebenenfalls substituierte 4- bis 12-gliedrige, gesättigte oder ungesättigte, monocyclische oder bicyclische, heterocyclische Gruppierung steht, welche 1 bis 4 Heteroatome (bis zu 4 Stickstoffatome und gegebenenfalls - alternativ oder additiv - ein Sauerstoffatom oder ein Schwefelatom, oder eine SO-Gruppierung oder eine SO<sub>2</sub>-Gruppierung) enthält, und welche zusätzlich ein bis drei Oxo-Gruppen (C=O) und/oder Thioxo-Gruppen (C=S) als Bestandteile des Heterocyclus enthält,

10

einschließlich aller möglichen tautomeren Formen der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) und der möglichen Salze der Verbindungen der allgemeinen Formel (I).

15

2.   Substituierte Benzoylcyclohexandione gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

20           m   für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

n   für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

25           A   für eine Einfachbindung oder für Alkandiyl (Alkylen) mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

          R<sup>1</sup>   für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für Alkoxy-carbonyl mit bis zu 6 Kohlenstoffatomen steht,

30

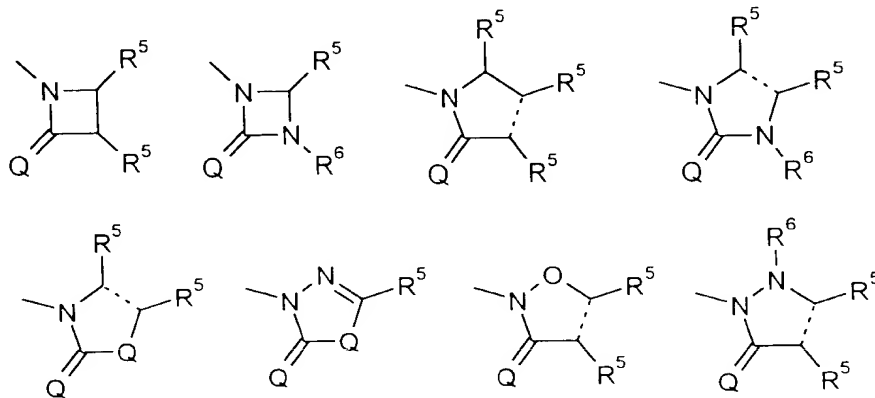


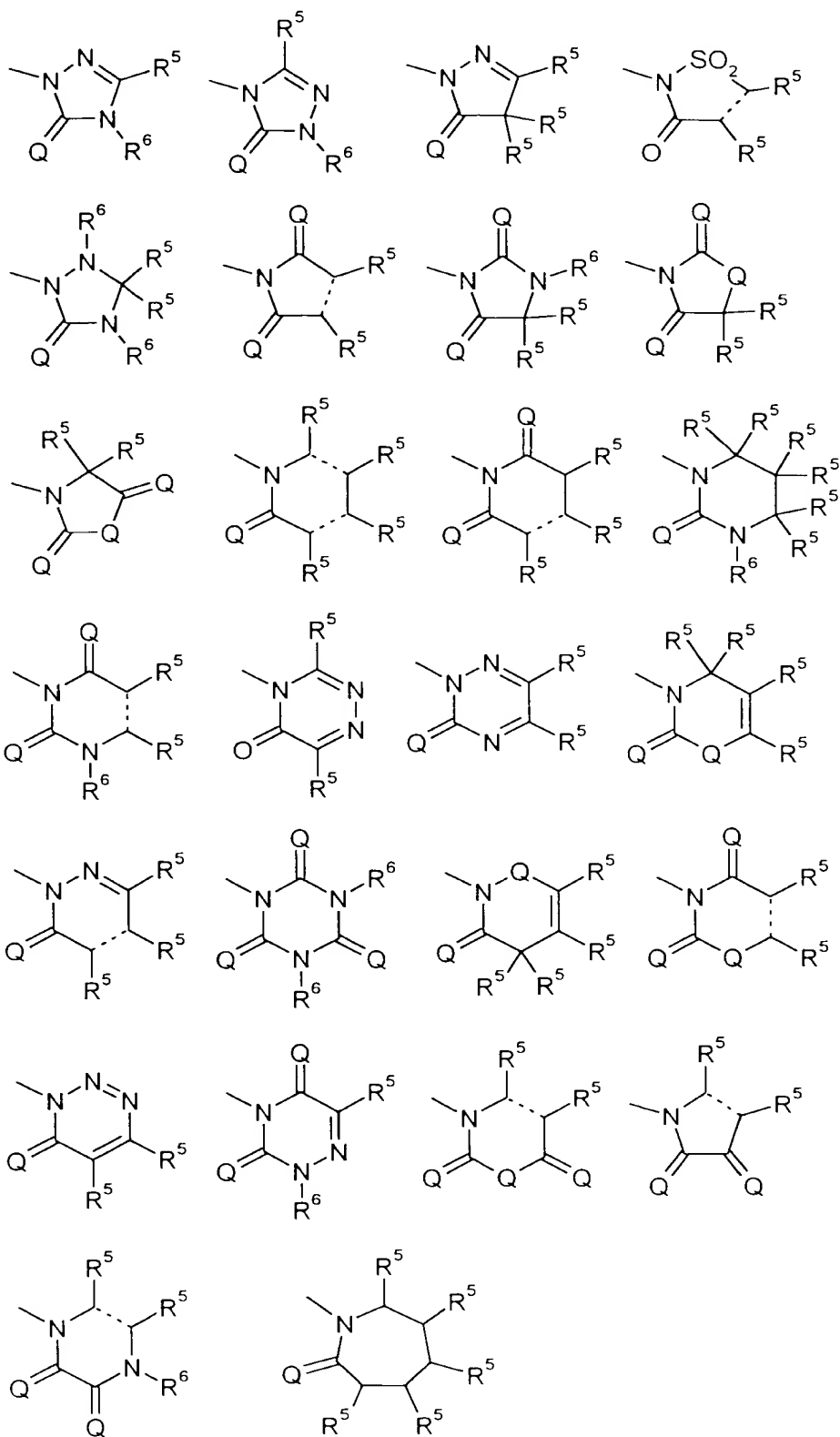
$R^2$  für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht, oder zusammen mit  $R^1$  für Alkandiyl (Alkylen) mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen steht, wobei in diesem Fall  $m$  für 1 steht und  $R^1$  und  $R^2$  am gleichen Kohlenstoffatom („geminal“) oder an zwei benachbarten Kohlenstoffatomen („vicinal“) stehen,

$R^3$  für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfinyl oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, oder für Alkylamino, Dialkylamino oder Dialkylaminosulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,

$R^4$  für Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfinyl oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, oder für Alkylamino, Dialkylamino oder Dialkylaminosulfonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht, und

$Z$  für eine der nachstehenden heterocyclischen Gruppierungen steht





worin jeweils die gestrichelt gezeichnete Bindung eine Einfachbindung oder eine Doppelbindung ist,

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

5

R<sup>5</sup> für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Cyano, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl, Alkynyl, Alkenyloxy, Alkenylthio oder Alkenylamino mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkenyl- bzw. Alkynylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Cycloalkyloxy, Cycloalkylthio oder Cycloalkylamino mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls bis zu 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Phenyl, Phenylloxy, Phenylthio, Phenylamino, Benzyl, Benzyloxy, Benzylthio oder Benzylamino steht, und

10

15

20

25

R<sup>6</sup> für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkylidenamino mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylamino, Dialkylamino oder Alkanoylamino mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl, Alkynyl oder Alkenyloxy mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkenyl- bzw.

30

Alkynylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl oder Cycloalkylamino mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls bis zu 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Phenyl oder Benzyl steht, oder zusammen mit einem benachbarten Rest R<sup>5</sup> oder R<sup>6</sup> für gegebenenfalls durch Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiertes Alkandiyl mit 3 bis 5 Kohlenstoffatomen steht, oder - für den Fall, daß zwei benachbarte Reste R<sup>5</sup> und R<sup>5</sup> sich an einer Doppelbindung befinden - zusammen mit dem benachbarten Rest R<sup>5</sup> auch für eine Benzogruppierung steht.

3. Substituierte Benzoylcyclohexandione gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

m für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

A für eine Einfachbindung, Methylen, Ethylen (Ethan-1,1-diyl) oder Dimethylen (Ethan-1,2-diyl) steht,

R<sup>1</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, oder für Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl steht,

R<sup>2</sup> für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, oder zusammen mit R<sup>1</sup> für Methylen, Ethan-1,1-diyl (Ethylen, -CH(CH<sub>3</sub>)-), Ethan-1,2-diyl (Di-

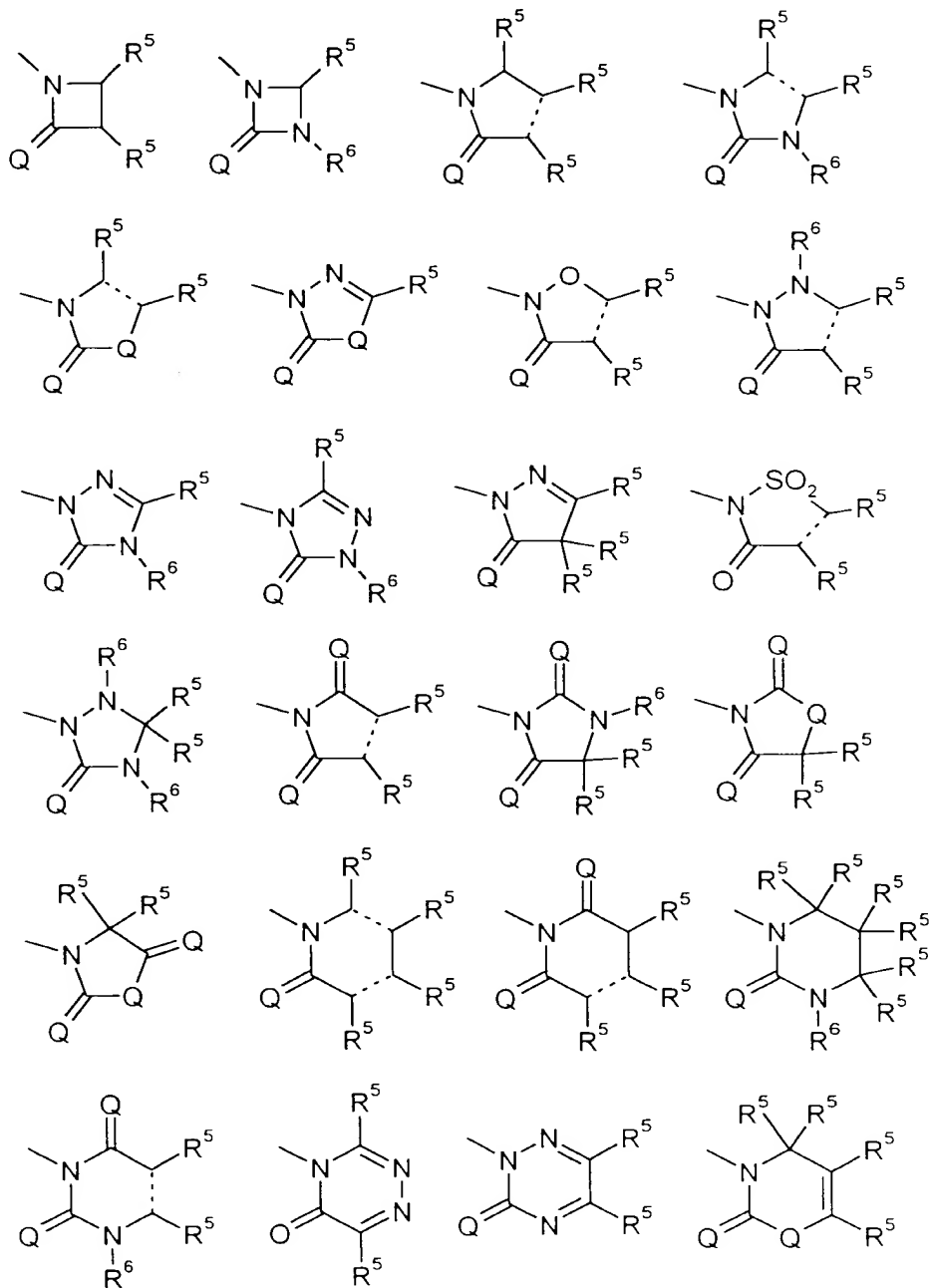
methylen,  $-\text{CH}_2\text{CH}_2-$ ), Propan-1,3-diyl (Trimethylen,  $-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2-$ ), Butan-1,4-diyl (Tetramethylen,  $-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2-$ ) oder Pentan-1,5-diyl (Pentamethylen,  $-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2-$ ) steht, wobei in diesem Fall m für 1 steht und  $\text{R}^1$  und  $\text{R}^2$  am gleichen Kohlenstoffatom („geminal“) oder an zwei benachbarten Kohlenstoffatomen („vicinal“) stehen,

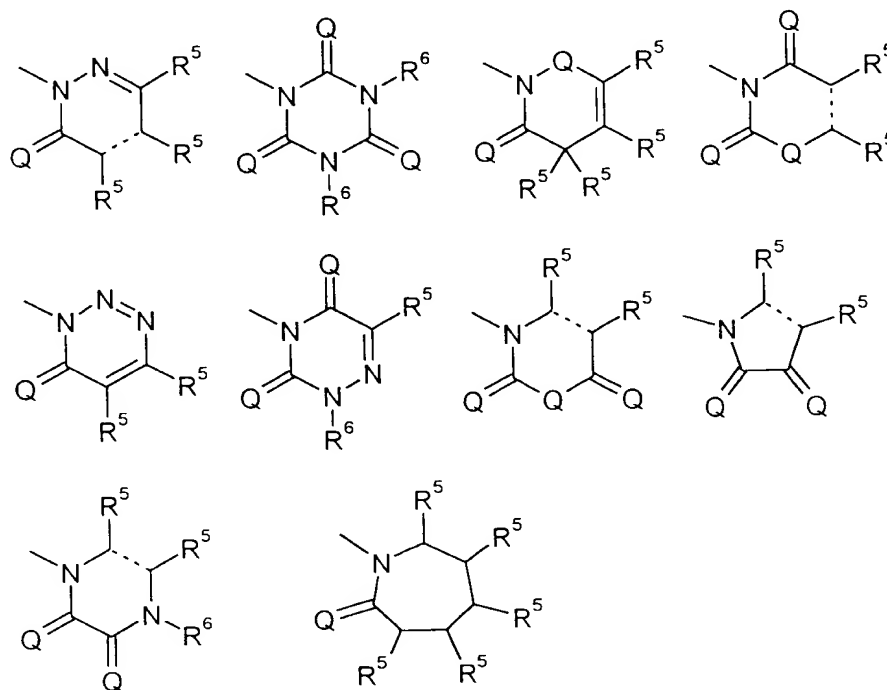
$\text{R}^3$  für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, oder für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Dimethylaminosulfonyl oder Diethylaminosulfonyl steht,

$\text{R}^4$  für Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, oder für Methylamino, Ethyl-

amino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Dimethylaminosulfonyl oder Diethylaminosulfonyl steht, und

Z für eine der nachstehenden heterocyclischen Gruppierungen steht





5 worin jeweils die gestrichelt gezeichnete Bindung eine Einfachbindung oder eine Doppelbindung ist,

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

10  $R^5$  für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl substitu-

15 iertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, für

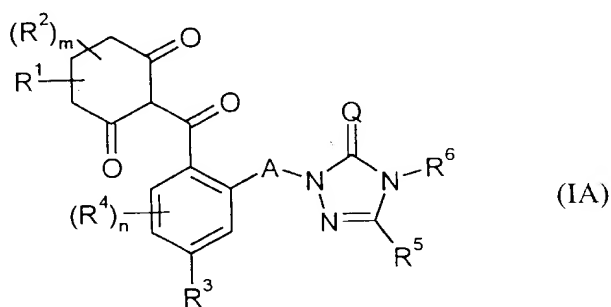
20 Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Di-n-propylamino

- 5 oder Di-i-propylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl, Butinyl, Propenyloxy, Butenyloxy, Propenylthio, Butenylthio, Propenylamino oder Butenylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, Cyclopropyloxy, Cyclobutyloxy, Cyclopentyloxy, Cyclohexyloxy, Cyclopropylthio, Cyclobutylthio, Cyclopentylthio, Cyclohexylthio, Cyclopropylamino, Cyclobutylamino, Cyclopentylamino oder Cyclohexylamino, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes Phenyl, Phenylloxy, Phenylthio, Phenylamino, Benzyl, Benzyloxy, Benzylthio oder Benzylamino steht, und
- 10
- 15
- 20  $R^6$  für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylamino, Ethylamino oder Dimethylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Ethenyl, Propenyl, Ethinyl, Propinyl oder Propenyloxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes Phenyl oder Benzyl steht, oder zusammen mit einem benachbarten Rest  $R^5$  oder  $R^6$  für jeweils gegebenenfalls durch Methyl und/oder Ethyl substituiertes
- 25
- 30



Propan-1,3-diyl (Trimethylen) oder Butan-1,4-diyl (Tetramethylen) steht, oder - für den Fall, daß zwei benachbarte Reste  $R^5$  und  $R^5$  sich an einer Doppelbindung befinden - zusammen mit dem benachbarten Rest  $R^5$  auch für eine Benzogruppierung steht.

4. Substituierte Benzoylcyclohexandione gemäß Anspruch 1, gekennzeichnet durch die allgemeine Formel (IA),



in welcher

$m$  für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

$n$  für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

$A$  für eine Einfachbindung oder für Methylen steht,

$Q$  für Sauerstoff oder Schwefel steht,

$R^1$  für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, *n*- oder *i*-Propyl steht,

$R^2$  für Methyl steht,

$R^3$  für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl,

Methylsulfonylmethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht,

5  $R^4$  für Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methylsulfonylmethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht,

10

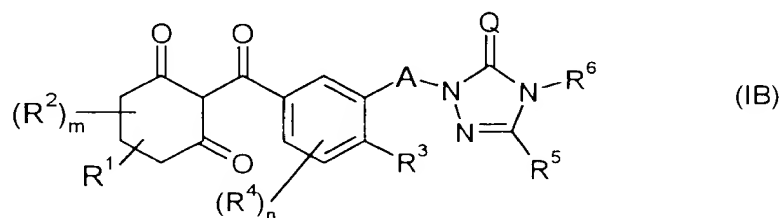
$R^5$  für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, oder für Cyclopropyl steht, und

15

$R^6$  für Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy oder Cyclopropyl steht.

5. Substituierte Benzoylcyclohexandione gemäß Anspruch 1, gekennzeichnet durch die allgemeine Formel (IB),

20



in welcher

25

m für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

A für eine Einfachbindung oder für Methylen steht,

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,

5

R<sup>2</sup> für Methyl steht,

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methylsulfonylmethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht,

10

R<sup>4</sup> für Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methylsulfonylmethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht,

15

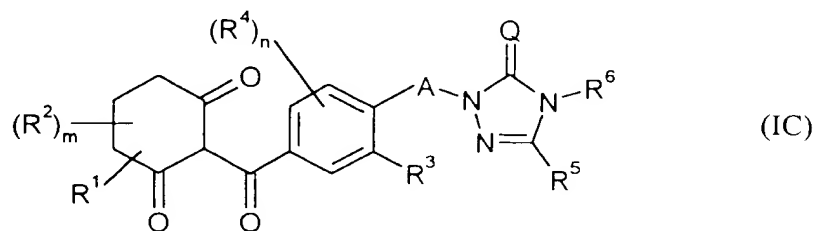
R<sup>5</sup> für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, oder für Cyclopropyl steht, und

20

R<sup>6</sup> für Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy oder Cyclopropyl steht.

25

6. Substituierte Benzoylcyclohexandione gemäß Anspruch 1, gekennzeichnet durch die allgemeine Formel (IC),



in welcher

m für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

A für eine Einfachbindung oder für Methylen steht,

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,

R<sup>2</sup> für Methyl steht,

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methylsulfonylmethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht,

R<sup>4</sup> für Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxymethyl, Methylthiomethyl, Methylsulfinylmethyl, Methylsulfonylmethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht,

$R^5$  für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, oder für Cyclopropyl steht, und

5

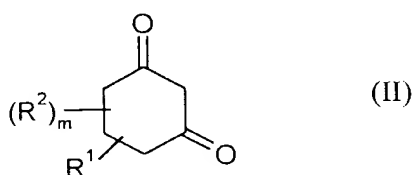
$R^6$  für Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy oder Cyclopropyl steht.

7. Substituierte Benzoylcyclohexandione gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß es sich bei den Salzen um die Natrium-, Kalium-, Magnesium-, Calcium-, Ammonium-,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl-ammonium-, Di-( $C_1$ - $C_4$ -alkyl)-ammonium-, Tri-( $C_1$ - $C_4$ -alkyl)-ammonium-, Tetra-( $C_1$ - $C_4$ -alkyl)-ammonium, Tri-( $C_1$ - $C_4$ -alkyl)-sulfonium-,  $C_5$ - oder  $C_6$ -Cycloalkyl-ammonium- und Di-( $C_1$ - $C_2$ -alkyl)-benzyl-ammonium-Salze handelt.

10

8. Verfahren zum Herstellen von substituierten Benzoylcyclohexandionen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß man 1,3-Cyclohexandion oder dessen Derivate der allgemeinen Formel (II),

15



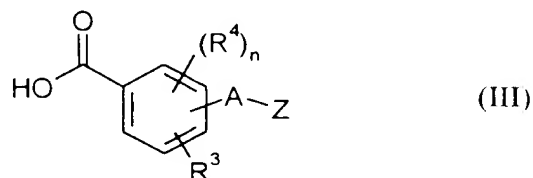
20

in welcher

$m$ ,  $R^1$  und  $R^2$  die in einem der Ansprüche 1 bis 6 angegebene Bedeutung haben,

25

mit substituierten Benzoesäuren der allgemeinen Formel (III),



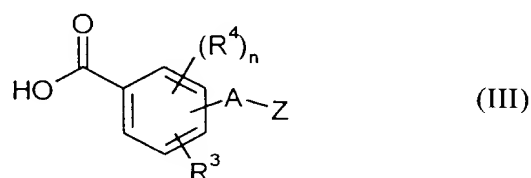
in welcher

n, A, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und Z die in einem der Ansprüche 1 bis 6 angegebene Bedeutung haben,

in Gegenwart eines Dehydratisierungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines oder mehrerer Reaktionshilfsmittel und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, umsetzt,

und gegebenenfalls im Anschluß daran an den so erhaltenen Verbindungen der Formel (I) im Rahmen der Substituentendefinition auf übliche Weise elektrophile oder nucleophile bzw. Oxidations- oder Reduktionsreaktionen durchführt oder die Verbindungen der Formel (I) auf übliche Weise in Salze überführt.

9. Substituierte Benzoesäuren der allgemeinen Formel (III),



in welcher

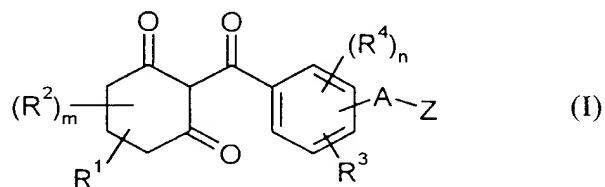
n, A, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und Z die in einem der Ansprüche 1 bis 6 angegebene Bedeutung haben,

ausgenommen die Verbindungen 2-(5-Carboxy-2,4-dichlor-phenyl)-4-difluor-methyl-5-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und 2-(5-Carboxy-2,4-dichlor-phenyl)-4,5-dimethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on.

- 5      10.      Verwendung von mindestens einem substituierten Benzoylcyclohexandion gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen.
- 10      11.      Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch den Gehalt von mindestens einem substituierten Benzoylcyclohexandion gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6 und üblichen Streckmitteln.

Substituierte Benzoylcyclohexandione**Z u s a m m e n f a s s u n g**

Die Erfindung betrifft neue substituierte Benzoylcyclohexandione der allgemeinen Formel (I),



in welcher

m, n, A, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und Z die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben,

sowie Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.